

PC 8915
④



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11) **EP 1 085 260 A1**

(12) **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(43) Veröffentlichungstag:
21.03.2001 Patentblatt 2001/12

(51) Int. Cl.⁷: **F23C 11/00, F23K 5/22**

(21) Anmeldenummer: 00118332.6

(22) Anmeldetag: 24.08.2000

(84) Benannte Vertragsstaaten:
**AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE**
Benannte Erstreckungsstaaten:
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 15.09.1999 DE 19944184
06.10.1999 DE 19947923

(71) Anmelder: **XCELLSIS GmbH**
73230 Kirchheim/Teck-Nabern (DE)

(72) Erfinder:
• **Cwik, Roland**
86153 Augsburg (DE)

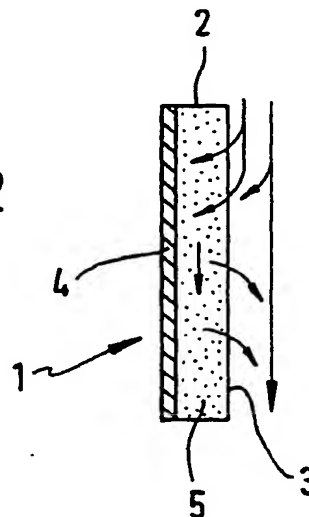
• **Ebert, Andreas**
73021 Kirchheim/Teck (DE)
• **Lamla, Oskar**
73266 Bissingen a.d. Teck (DE)
• **Schüssler, Martin**
89073 Ulm (DE)
• **Stefanovski, Thomas**
71034 Böblingen (DE)

(74) Vertreter:
Dahmen, Toni, Dipl.-Ing. et al
DaimlerChrysler AG,
FTP, C 106
70546 Stuttgart (DE)

(54) **Verdampfer**

(57) Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung zum Verdampfen von Flüssigkeiten mit einem porösen, wärmeleitfähigen Verdampfungskörper (2), wobei der ein Katalysatormaterial (5) enthaltende Verdampfungskörper auf einer Oberfläche (3) von einem gasförmigen Oxidationsmittel überströmbar und auf der gegenüberliegenden Oberfläche (4) gasundurchlässig ist, wobei die zu verdampfende Flüssigkeit und gegebenenfalls ein zusätzliches Brennmittel zum Verdampfungskörper zuführbar ist, und wobei die benötigte Verdampfungswärme durch eine exotherme Reaktion der Flüssigkeit oder gegebenenfalls des zusätzlichen Brennmittels mit dem gasförmigen Oxidationsmittel an dem Katalysatormaterial bereitgestellt wird.

Fig. 2



EP 1 085 260 A1

Beschreibung

wobei

[0001] Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung zum Verdampfen von Flüssigkeiten gemäß dem Oberbegriff des Patentanspruchs 1.

[0002] Aus der DE 44 26 692 C1 ist eine zweistufige Verdampfereinheit in Form eines Plattenwärmtauschers bekannt, bei dem sich Platten mit Verdampferäumen und Wärmeträgeräumen abwechseln. In die Wärmeträgeräume wird die benötigte Verdampfungswärme mit Hilfe eines Wärmeträgermediums, beispielsweise eines heißen Thermoöls, eingebracht. Weiterhin ist es bekannt, die Wärme direkt in den Wärmeträgeräumen durch eine katalytische Umsetzung eines Brennmittels zu erzeugen.

[0003] Weiterhin ist aus der DE 197 20 294 C1 ein Reformierungsreaktor mit einem vorgeschalteten, gattungsgemäßen Verdampfer bekannt. Der Reaktor umfaßt einen an die Reaktionszone flächig angrenzenden Verdampfungskörper mit poröser, wärmeleitfähiger Struktur zur Bereitstellung des zu reformierenden Gasgemisches durch Vermischung und Verdampfung der ihm zugeführten Gasgemischkomponenten.

[0004] Es ist die Aufgabe der Erfindung, einen hinsichtlich Masse, Volumen, Dynamik und thermischer Beanspruchung verbesserten Verdampfer zu schaffen.

[0005] Diese Aufgabe wird durch eine Vorrichtung mit den Merkmalen des Patentanspruchs 1 gelöst.

[0006] Die Ausbildung eines Verdampfers in Form eines porösen, überströmten und direkt katalytisch beheizten Verdampfungskörpers zeigt im Hinblick auf Masse, Volumen und Kosten erhebliche Vorteile. So kann auf die Ausbildung zusätzlicher Räume für die Bereitstellung der notwendigen Verdampfungsenergie vollständig verzichtet werden. Die Ausbildung als überströmte flächige Schicht ermöglicht die Integration des Verdampfers in bekannte Plattenreaktoren. Der poröse Körper bildet eine hohe benetzbare Oberfläche, die einen guten Wärmeeintrag in die Flüssigkeit gewährleistet. Wegen der porösen Struktur sind die auftretenden mechanischen Spannungen beim Verdampfen geringer als beispielsweise bei einem ebenen massiven Blech.

[0007] Die vertikale Anordnung der Oberflächen und das Einbringen der zu verdampfenden Flüssigkeit im oberen Bereich des Verdampfungskörpers weist den Vorteil auf, daß die Schwerkraft zur Verteilung der zu verdampfenden Flüssigkeit innerhalb des Verdampfungskörpers genutzt werden kann. Die Aufteilung des Verdampfungskörpers in eine obere Verdampfungsschicht und eine untere Heizschicht weist den Vorteil auf, daß sich die Poren des Katalysatormaterials nicht mit Flüssigkeit füllen können, was zu einer Beeinträchtigung der Funktion führen würde.

[0008] Weiter Vorteile und Ausgestaltungen der Erfindung gehen aus den Unteransprüchen und der Beschreibung hervor. Die Erfindung ist nachstehend anhand einer Prinzipzeichnung näher beschrieben,

Fig. 1 ein erstes Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäßen Verdampfers,

Fig. 2 ein zweites Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäßen Verdampfers unter Ausnutzung der Schwerkraft, und

Fig. 3 ein drittes Ausführungsbeispiel eines erfindungsgemäßen Verdampfers mit einem in eine Verdampfungsschicht und eine Heizschicht aufgeteilten Verdampfungskörper zeigt.

[0009] Die insgesamt mit 1 bezeichnete Vorrichtung zum Verdampfen von Flüssigkeiten, im folgenden kurz Verdampfer genannt, enthält einen porösen, wärmeleitfähigen Verdampfungskörper 2. Zumindest eine Oberfläche 3 des Verdampfungskörpers 2 wird von einem gasförmigen Oxidationsmittel, vorzugsweise Luft oder Sauerstoff, überströmt. Auf der der Oberfläche 3 gegenüberliegenden Oberfläche weist der Verdampfungskörper 2 eine gasundurchlässige Schicht 4 auf. Weiterhin enthält der Verdampfungskörper 2 ein schematisch als Punkte dargestelltes Katalysatormaterial 5. Die zu verdampfende Flüssigkeit wird der Oberfläche 3 des Verdampfungskörpers 2 zugeführt. Die notwendige Verdampfungsenergie wird durch eine exotherme Reaktion eines Brennmittels mit dem in den Verdampfungskörper 2 eindiffundierenden Oxidationsmittel an dem darin enthaltenen Katalysatormaterial 5 bereitgestellt. Bei dem Brennmittel kann es sich dabei um die zu verdampfende Flüssigkeit selbst handeln. Alternativ kann jedoch auch ein zusätzliches Brennmittel zugeführt werden, und zwar sowohl in flüssiger als auch teilweise oder vollständig in gasförmiger Form. Da der Verdampfungskörper 2 auf der der Oberfläche 3 gegenüberliegenden Oberfläche eine gasundurchlässige Schicht 4 aufweist, strömt das entstehende Gas zurück in das den Verdampfungskörper 2 überströmende Oxidationsmittel und wird zusammen mit diesem aus dem Verdampfer 1 abgeführt.

[0010] Vorzugsweise weist der Verdampfungskörper 2 Makroporen mit einer Größe im Bereich von 0,1 bis 10 µm auf. Er kann vorzugsweise durch Verpressen von Katalysatormaterial 5 in eine dünne und großflächige, stark komprimierte Schicht hergestellt werden. Um dem Katalysatormaterial 5 eine bessere mechanische Stabilität beziehungsweise eine verbesserte Wärmeleitfähigkeit zu verleihen, kann das Katalysatormaterial 5 in eine Trägerstruktur verpreßt werden. Bei dieser Trägerstruktur handelt es sich vorzugsweise um eine netzartige Matrix, die durch Vermischen des Katalysatormaterials 5 mit einem Metallpulver und anschließendem Verpressen dieses Gemisches hergestellt werden kann. Die Herstellung eines solchen porösen, Katalysatormaterials enthalten-

den Körpers ist beispielsweise aus der DE-A-19743673 bekannt.

[0011] Der poröse Verdampfungskörper 2 bildet eine hohe benetzbare Oberfläche, die einen guten Wärmeeintrag in die Flüssigkeit gewährleistet. Wegen der porösen Struktur sind die auftretenden mechanischen Spannungen beim Verdampfen geringer als beispielsweise in einem ebenen massiven Blech.

[0012] Die zu verdampfende Flüssigkeit kann an einer beliebigen Stelle in den Verdampfer 1 eingebracht werden. Alternativ ist es auch möglich, die Flüssigkeit bereits in den Oxidationsmittelstrom stromauf des Verdampfers 1 einzubringen. Vorzugsweise wird die zu verdampfende Flüssigkeit mit Hilfe einer Einspritzdüse auf die Oberfläche 3 des Verdampfungskörpers 2 gesprüht. In der Zeichnung ist nur das Prinzip des Verdampfers 1 dargestellt. Es liegt jedoch im Bereich des fachmännischen Könnens, ein geeignetes Gehäuse mit Zu- und Ableitungen für die Medien vorzusehen. Weiterhin ist es auch möglich, aus mehreren Verdampfungskörpern 2 eine Stapelanordnung zu bilden, wie es allgemein aus der Reaktortechnik und speziell für gepreßte Katalysatorscheiben aus der nicht vorveröffentlichten Patentanmeldung DE 198 32 625.4 der Anmelderin bekannt ist. Weiterhin ist es möglich, einen erfindungsgemäßen Verdampfungskörper 2 mit anderen gepreßten Katalysatorschichten, welche zur Durchführung anderer katalytischer Reaktionen geeignet sind, zu einem Gesamtsystem in Form eines Plattenreaktors zu verbinden. Ein solches Gesamtsystem stellt beispielsweise ein Gaserzeugungssystem für Brennstoffzellenanlagen dar, bei dem aus einem wasserstoffhaltigen Rohkraftstoff ein wasserstoffreiches Gas für den Einsatz in Brennstoffzellen erzeugt wird. Insbesondere bei mobilen Anwendungen werden hohe Anforderungen in Bezug auf Masse, Volumen, Kosten und Dynamik gestellt. Diese Anforderungen können durch einen erfindungsgemäßen Verdampfer in verbessertem Umfang erfüllt werden.

[0013] Die Funktion des beschriebenen Verdampfers 1 kann vorteilhafterweise durch die Ausnützung der Schwerkraft verbessert werden. Die zugeführte Flüssigkeit wird nämlich bei der in Fig. 1 dargestellten Anordnung durch die Schwerkraft von der Oberfläche 3 her kommend in den Verdampfungskörper 2 geführt. Das dort entstehende heiße und damit leichtere Gas strömt dann entgegen der Schwerkraft in Richtung der Oberfläche 3 und überträgt hierbei bereits Wärmeenergie auf die einströmende Flüssigkeit.

[0014] Eine noch verbesserte Ausnützung der Schwerkraft ist mit der in Fig. 2 gezeigten Anordnung möglich. Hierbei erstrecken sich die Oberfläche 3 und die gasundurchlässige Schicht 4 in einer Betriebsposition des Verdampfers 1 in vertikaler Richtung. Auch das gasförmige Oxidationsmittel wird in vertikaler Richtung von oben nach unten geführt. Die zu verdampfende Flüssigkeit wird ebenfalls im oberen Bereich auf die Oberflächenseite 4 aufgebracht. Dies hat zur Folge,

daß die noch nicht verdampften Flüssigkeitsanteile durch die Schwerkraft innerhalb des Verdampfungskörpers 2 nach unten geführt werden. Der effektive Laufweg der zu verdampfenden Flüssigkeit innerhalb des Verdampfungskörpers 2 wird dadurch verlängert. Das beim Verdampfen entstehende Gas tritt wiederum aus der Oberfläche 3 aus, mischt sich mit dem Oxidationsmittelstrom und wird zusammen mit diesem aus dem Verdampfer 1 abgeführt.

[0015] Ein weiteres bevorzugtes Ausführungsbeispiel zeigt Fig. 3. Hierbei ist nicht der gesamte Verdampfungskörper 2 mit Katalysatormaterial 5 versehen, sondern der Verdampfungskörper 2 ist in zwei Schichten 2a und 2b aufgeteilt. Beide Schichten 2a, 2b sind porös ausgebildet. Die der Oberfläche 3 benachbarte und als Verdampfungsschicht ausgebildete Schicht 2a weist jedoch im Gegensatz zu der der gasundurchlässigen Schicht 4 benachbarten Schicht 2b kein Katalysatormaterial 5 auf. Die Schicht 2b dient hierbei als katalytische Heizschicht, in der das Oxidationsmittel und das Brennmittel zur Erzeugung der benötigten Wärmeenergie umgesetzt wird. Die Wärme wird dann zum einen durch Wärmeleitung von der Heizschicht 2b auf die benachbarte Verdampfungsschicht 2a übertragen. Zum anderen steht auch das aus der Heizschicht 2b ausströmende umgesetzte Gas in Wärmeaustausch mit der zugeführten Flüssigkeit beziehungsweise zum zusätzlichen Brennmittel und trägt somit ebenfalls zur Erwärmung beziehungsweise Verdampfung bei. Durch die Aufteilung des Verdampfungskörpers 2 in zwei Schichten 2a, 2b wird verhindert, daß sich die Poren des Katalysatormaterials 5 mit Flüssigkeit füllen und somit die Funktion beeinträchtigt wird. In diesem Fall treten nämlich durch die in Strömungsrichtung vorgelagerte Verdampfung im wesentlichen nur gasförmige Medien in die Heizschicht 2b ein.

[0016] Ein bevorzugtes Anwendungsbeispiel für einen erfindungsgemäßen Verdampfer ist der Einsatz in einem Gaserzeugungssystem für mobile Brennstoffzellenanlagen. In einem solchen Gaserzeugungssystem wird, wie bereits weiter oben dargestellt, aus einem wasserstoffhaltigen Rohkraftstoff ein wasserstoffreiches Gas für den Einsatz in Brennstoffzellen erzeugt. In diesem Fall wird dem Verdampfer 1 als Oxidationsmittel Sauerstoff, vorzugsweise in Form von Umgebungsluft, zugeführt. Als wasserstoffhaltiger Rohkraftstoff wird vorzugsweise Methanol eingesetzt. Es können jedoch auch beliebige andere Kraftstoffe, insbesondere Kohlenwasserstoffe verwendet werden. In diesem Falle kann die zu verdampfende Flüssigkeit gleichzeitig auch als Brennmittel für den Verdampfer 1 verwendet werden. Das verdampfte Methanol und die Luft treten aus dem Verdampfer 1 aus und werden in einer nachfolgenden Reformierungsstufe durch eine partielle Oxidationsreaktion zu einem wasserstoffreichen Gas umgesetzt. Weiterhin ist es möglich, anstelle des Methanols auch ein Wasser/Methanolgemisch zu verwenden. In diesem Falle kann in der nachfolgenden

Reformierungsstufe eine autotherme Reformierung durchgeführt werden. Selbstverständlich ist es auch möglich, separate Verdampfer 1 für das Methanol und das Wasser vorzusehen und die austretenden gasförmigen Medien erst anschließend zu mischen. In diesem Falle müßte jedoch in den Verdampfer 1 für das Wasser ein zusätzliches Brennmittel zur Erzeugung der benötigten Verdampfungswärme zugegeben werden.

daß der Verdampfungskörper (2) Makroporen mit einer Größe im Bereich von 0,1 bis 10 µm aufweist.

Patentansprüche

1. Vorrichtung (1) zum Verdampfen von Flüssigkeiten mit einem porösen, wärmeleitfähigen Verdampfungskörper (2),
dadurch gekennzeichnet,
daß der Verdampfungskörper (2), welcher ein Katalysatormaterial (5) enthält, auf einer Oberfläche (3) von einem gasförmigen Oxidationsmittel überströmbar ist, daß der Verdampfungskörper (2) auf der gegenüberliegenden Oberfläche (4) gasundurchlässig ist, daß die zu verdampfende Flüssigkeit und gegebenenfalls ein zusätzliches Brennmittel über die Oberfläche (3) zum Verdampfungskörper (2) zuführbar ist, wobei die benötigte Verdampfungswärme durch eine exotherme Reaktion der Flüssigkeit oder gegebenenfalls des zusätzlichen Brennmittels mit dem gasförmigen Oxidationsmittel an dem Katalysatormaterial (5) bereitgestellt wird.
2. Vorrichtung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß die zu verdampfenden Flüssigkeit auf die Oberfläche (3) aufgesprüht wird.
3. Vorrichtung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß sich die Oberflächen (3, 4) in einer Betriebsposition in vertikaler Richtung erstrecken und daß die zu verdampfende Flüssigkeit im oberen Bereich des Verdampfungskörpers (2) auf die Oberfläche (3) aufgebracht wird, wobei die zu verdampfende Flüssigkeit aufgrund der Schwerkraft in den unteren Bereich des Verdampfungskörpers (2) strömt.
4. Vorrichtung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
daß der Verdampfungskörper (2) aus zwei Schichten (2a, 2b) besteht, wobei die der Oberfläche (3) benachbarte Schicht (2a) kein Katalysatormaterial (5) enthält und als Verdampfungsschicht ausgebildet ist und wobei die der gasundurchlässigen Oberfläche (4) benachbarte Schicht (2b) Katalysatormaterial (5) enthält und als katalytische Heizschicht ausgebildet ist.
5. Vorrichtung nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,

Fig. 1

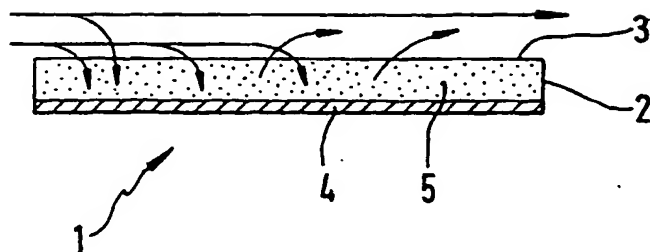


Fig. 2

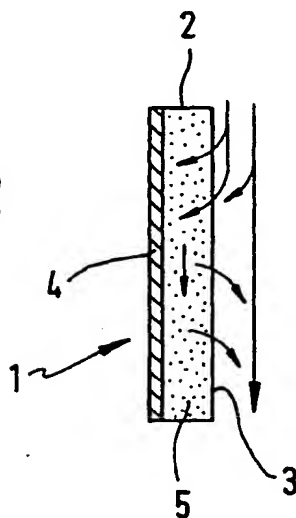
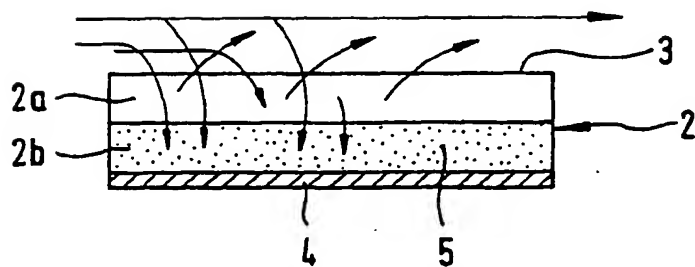


Fig. 3





Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung
EP 00 11 8332

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.7)
Y	US 4 388 892 A (RODY MARC P N ET AL) 21. Juni 1983 (1983-06-21) * Spalte 1, Zeile 25 - Zeile 41 * * Spalte 2, Zeile 64 - Spalte 3, Zeile 11 * * Spalte 7, Zeile 16 - Zeile 30 *	1-5	F23C11/00 F23K5/22
Y	DE 37 29 114 A (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG) 23. März 1989 (1989-03-23) * das ganze Dokument *	1-5	
A	US 4 069 005 A (PALANI NARAYANASWAMI) 17. Januar 1978 (1978-01-17) * Spalte 8, Zeile 43 - Spalte 9, Zeile 10; Abbildung 1 *	1-3	
A	US 4 273 560 A (KOSTKA HANA) 16. Juni 1981 (1981-06-16) * Zusammenfassung; Anspruch 1 *	1	
A	US 4 795 618 A (LAUMEN MICHAEL) 3. Januar 1989 (1989-01-03) * das ganze Dokument *	1	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.7)
A	US 4 089 303 A (BRULFERT ANDRE) 16. Mai 1978 (1978-05-16) * das ganze Dokument *	1	F23C F23K F23D F22B
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 24. November 2000	Prüfer Coli, E
<p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur</p> <p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			

EPO FORM 1503 (03.82) (P44003)

**ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT
ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 00 11 8332

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentdokumente angegeben.

Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am
Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

24-11-2000

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4388892 A	21-06-1983	KEINE	
DE 3729114 A	23-03-1989	AT 70906 T	15-01-1992
		DE 3867225 A	06-02-1992
		DE 3867225 D	06-02-1992
		WO 8902054 A	09-03-1989
		EP 0328593 A	23-08-1989
US 4069005 A	17-01-1978	KEINE	
US 4273560 A	16-06-1981	DE 2837899 A	13-03-1980
		AT 593 T	15-02-1982
		CA 1155663 A	25-10-1983
		DK 357979 A	01-03-1980
		EP 0008744 A	19-03-1980
		JP 55033599 A	08-03-1980
		JP 62008681 B	24-02-1987
		NO 792799 A, B,	03-03-1980
US 4795618 A	03-01-1989	DE 3435319 A	03-04-1986
		AU 4951585 A	17-04-1986
		WO 8602016 A	10-04-1986
		EP 0197108 A	15-10-1986
		JP 62500438 T	26-02-1987
US 4089303 A	16-05-1978	FR 2313634 A	31-12-1976
		DE 2624423 A	23-12-1976
		GB 1499489 A	01-02-1978

EPO FORM P4481

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82